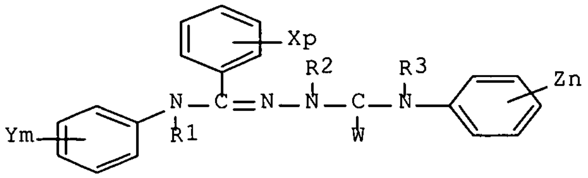
JP 09301947

```
L1   ANSWER 1 OF 1  WPIDS  COPYRIGHT 2004 THOMSON DERWENT on STN
AN   1998-059149 [06]   WPIDS
DNC  C1998-020433
TI   New semicarbazone derivatives are noxious organism inhibitors - exhibit
     excellent insecticidal and miticidal activity against e.g. various
     agricultural insect pests and spider mites, are harmless to e.g. humans
     and fish.
DC   C03
PA   (NISC) NISSAN CHEM IND LTD
CYC  1
PI   JP 09301947   A  19971125 (199806)*      22p    C07C281-14      <--
ADT  JP 09301947 A JP 1996-123496 19960517
PRAI JP 1996-123496   19960517
IC   ICM  C07C281-14
     ICS  A01N047-30
AB    JP  09301947 A UPAB: 19980223
      Semicarbazone derivatives of formula (I) are new. W= O or S; X, Y, Z= halo,
      OH, CN, NO2, SCN, trimethylsilyl, R8, OR8, S(O)pR8 , OS(O)2R8, OC(O)R8,
      C(O)R8, CO2R8, C(O)N(R8)R9, SO2N(R8)R9, NHC(O)R8, N(R8)R9 or -CH=CH-CH=CH-, -
      OCH2O-, -OCH2CH2O-, -OCF2O-, -OCF2CF2O- or -OCF2CF2- each of which is formed
      from neighbouring carbons; R1-R3= H, 1-6C alkyl, 2-6C alkenyl, 2-6C alkynyl,
      1-6C haloalkyl, 2-6C alkoxyalkyl, 2-6C alkylcarbonyl, 2-6C alkoxycarbonyl, 2-
      6C haloalkylcarbonyl, 1-6C alkylthio, 1-6C haloalkylthio, R5OC(O)N(R6)S-,
      R6(R7)NS- or optionally (R4)q-substituted benzyl; R4= halo, OH, CN, NO2, 1-6C
      alkyl, 1-6C haloalkyl, 1-6C alkoxy, 1-6 C haloalkoxy, 1-6C alkylthio, 1-6C
      haloalkylthio, 1-6C alkylsulphonyl, 1-6C haloalkylsulphonyl, 2-6C
      alkoxycarbonyl, NH2 or di 1-6C alkylamino ; R5-R7= 1-6C alkyl, optionally
      (R4)q -substituted phenyl or optionally (R4)q-substituted benzyl; R8= 1-6C
      alkyl, 1-6C haloalkyl, 2-6C alkenyl, 2-6C haloalkenyl, 2-6C alkynyl, 2-6C
      haloalkynyl, 3-6C cycloalkyl, 3-6C halocycloalkyl, 4-7C cycloalkylalkyl, 2-6C
      alkoxyalkyl, 2-6C alkylthioalkyl, 2-6C alkoxycarbonylalkyl, 2-6C cyanoalkyl,
      optionally (R4)q-substituted phenyl, optionally (R4)q-substituted benzyl or
      (R4)r-substituted pyrydyl; R9= H or 1-6C alkyl; l, m q = 0-5; n = 1-5; p = 0-
      2; r = 0-4.
      USE - (I) are useful as noxious organism inhibitors. (I) exhibit excellent
      insecticidal and miticidal activity against e.g. various agricultural insect
      pests and spider mites.
      ADVANTAGE - (I) do not affect mammals, fish and useful insects.  Dwg.0/0
FS   CPI
FA   AB; GI; DCN
MC   CPI: C05-B01B; C07-D04C; C10-A13; C14-B04A; C14-B04B

L2   ANSWER 1 OF 1  HCAPLUS  COPYRIGHT 2004 ACS on STN
AN   1997:754337  HCAPLUS
DN   128:13144
TI   Preparation of benzamide semicarbazones and their use as pesticides
IN   Yagi, Kazuo; Otsu, Tadashi; Numata, Akira; Ishii, Shigeru; Ogura,
     Tomoyuki; Miyake, Toshiro; Fujita, Akahiko; Mitsumori, Norihiko; Takii,
     Shinji
PA   Nissan Chemical Industries, Ltd., Japan
SO   Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 22 pp.
     CODEN: JKXXAF
DT   Patent
LA   Japanese
FAN.CNT 1
     PATENT NO.       KIND  DATE          APPLICATION NO.  DATE
     ---------------  ----  --------      ---------------  --------
PI   JP 09301947       A2   19971125      JP 1996-123496   19960517 <--
```

PRAI JP 1996-123496 19960517
OS MARPAT 128:13144
GI



I

AB The title compds. I [W = O, S; X, Y, Z = halo, OH, cyano, NO2, SCN, etc.; R1-R3 = H, C1-6 (un)substituted alkyl, C2-6 (un)substituted alkenyl, (un)substituted benzyl, etc.; p, m = 0-5; n = 1-5], useful as insecticides and acaricides, are prepared The semicarbazones have low toxicity to mammals, fish, etc. 4-ClC6H4NHCOC6H4Cl-4 was refluxed with PCl5, concentrated, and treated with H2NNHCONHC6H4OCF3-4 and Et3N at room temperature for 3 h to give I (R1-R3 = H, Xp = Ym = 4-Cl, W = O, Zn = 4-OCF3).

L3 ANSWER 1 OF 1 JAPIO (C) 2004 JPO on STN
AN 1997-301947 JAPIO
TI SEMICARBAZONE DERIVATIVE AND PEST ORGANISM-CONTROLLING AGENT
IN YAGI KAZUO; OTSU OSAMU; NUMATA AKIRA; ISHII SHIGERU; OGURA TOMOYUKI; MIYAKE TOSHIRO; FUJITA AKIHIKO; MIMORI NORIHIKO; TAKII SHINJI
PA NISSAN CHEM IND LTD
PI JP 09301947 A 19971125 Heisei
AI JP 1996-123496 (JP08123496 Heisei) 19960517
PRAI JP 1996-123496 19960517
SO PATENT ABSTRACTS OF JAPAN (CD-ROM), Unexamined Applications, Vol. 1997
AN 1997-301947 JAPIO
AB PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a novel semicarbazone derivative which is represented by a specific formula, has an insecticidal and acaricidal activities against insect pests and spider mites in agriculture with a low does without adverse effect on mammalians, fishes and beneficial insects.
SOLUTION: This semicarbazone derivative is represented by formula I (W is O, S; X, Y and Z are each a halogen, OH, cyano, nitro, SCN or the like; R<SP>1</SP>-R<SP>3</SP> are each H, a 1-6C alkyl, a 2-6C alkenyl, a 2-6C alkynyl; 1 and m are each 0-5; n is 1-5), typically N-(4-chlorophenyl)-4-chlorobenzamide-4- trifluoromethoxyphenyl-semicarbazone. The objective compound is prepared, for example, by allowing a compound of formula II with phosphorus pentachloride in the presence or absence of an inert solvent, allowing the product to react with thionly chloride as it is added together with dimethyl- formamide, then allowing the chloride product to react with a compound of formula III in the presence or absence of a base followed by reaction of the product with R<SP>1</SP>L<SP>1</SP> (L<SP>1</SP> is Cl or Br).
COPYRIGHT: (C)1997,JPO

(19)日本国特許庁（JP）　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号

特開平9−301947

(43)公開日　平成9年(1997)11月25日

(51)Int.Cl.^{6}	識別記号	庁内整理番号	FI		技術表示箇所
C07C 281/14		9451−4H	C07C 281/14		
A01N 47/30			A01N 47/30	A	

審査請求　未請求　請求項の数7　OL　（全22頁）

(21)出願番号　特願平8−123496

(22)出願日　平成8年(1996)5月17日

(71)出願人　000003986
日産化学工業株式会社
東京都千代田区神田錦町3丁目7番地1

(72)発明者　八木　和生
千葉県船橋市坪井町722番地1　日産化学工業株式会社中央研究所内

(72)発明者　大津　督
千葉県船橋市坪井町722番地1　日産化学工業株式会社中央研究所内

(72)発明者　沼田　昭
千葉県船橋市坪井町722番地1　日産化学工業株式会社中央研究所内

最終頁に続く

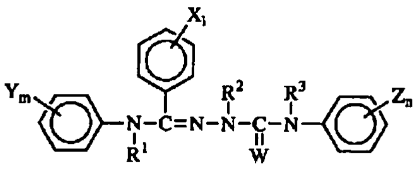
(54)【発明の名称】　セミカルバゾン誘導体及び有害生物防除剤

(57)【要約】

【課題】　農業害虫、ハダニ類に対して優れた殺虫・殺ダニ活性を有し、かつホ乳類、魚類及び益虫に対してはほとんど悪影響を及ぼさない有害生物防除剤の提供。

【解決手段】　式（I）

【化1】



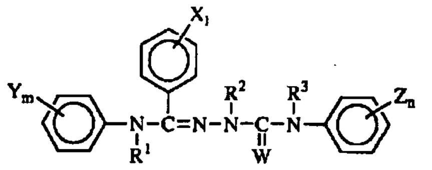
(I)

〔式中、Wは酸素原子又はイオウ原子を示し、X、Y及びZは、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基又はC_{2-6}アルコキシカルボニル基等を示し、R^1、R^2及びR^3は、各々独立して水素原子、C_{1-6}アルキル基等を示し、lは0〜5の整数を示し、mは0〜5の整数を示し、nは1〜5の整数を示す。〕で表わされるセミカルバゾン誘導体及びそれを含有する有害生物防除剤の提供。

【特許請求の範囲】

【請求項１】　一般式（Ｉ）

【化１】



（I）

〔式中、Wは酸素原子又はイオウ原子を示し、
X、Y、Zは各々独立してハロゲン原子、水酸基、シアノ基、ニトロ基、SCN基、トリメチルシリル基、R^8、OR^8、$S(O)_pR^8$基、$OS(O)_2R^8$基、$OC(O)R^8$基、$C(O)R^8$基、CO_2R^8基、$C(O)N(R^8)R^9$基、$SO_2N(R^8)R^9$基、$NHC(O)R^8$基、$N(R^8)R^9$基又は隣あった炭素原子間で形成する-CH=CH-CH=CH-基、$-OCH_2O-$基、$-OCH_2CH_2O-$基、$-OCF_2O-$基、$-OCF_2CF_2O-$基若しくは$-OCF_2CF_2-$基を示し、
R^1、R^2、R^3は各々独立して水素原子、C_{1-6}アルキル基、C_{2-6}アルケニル基、C_{2-6}アルキニル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{2-6}アルコキシアルキル基、C_{2-6}アルキルカルボニル基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基、C_{2-6}ハロアルキルカルボニル基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、$R^5OC(O)N(R^6)S-$基、$R^6(R^7)NS-$基又は$(R^4)_q$によって置換されていてもよいベンジル基を示し、
R^4はハロゲン原子、水酸基、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}アルキルスルホニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニル基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基、アミノ基又はジC_{1-6}アルキルアミノ基を示し、
R^5、R^6及びR^7は各々独立してC_{1-6}アルキル基、$(R^4)_q$によって置換されていてもよいフェニル基又は$(R^4)_q$によって置換されていてもよいベンジル基を示し、
R^8はC_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{2-6}アルケニル基、C_{2-6}ハロアルケニル基、C_{2-6}アルキニル基、C_{2-6}ハロアルキニル基、C_{3-6}シクロアルキル基、C_{3-6}ハロシクロアルキル基、C_{4-7}シクロアルキルアルキル基、C_{2-6}アルコキシアルキル基、C_{2-6}アルキルチオアルキル基、C_{2-6}アルコキシカルボニルアルキル基、C_{2-6}シアノアルキル基、$(R^4)_q$によって置換されていてもよいフェニル基、$(R^4)_q$によって置換されていてもよいベンジル基又は$(R^4)_r$によって置換されていてもよいピリジル基を示し、
R^9は水素原子又はC_{1-6}アルキル基を示し、
lは０～５の整数（ただし、lが２～５の場合Xは同一であっても異なっていてもよい）を示し、
mは０～５の整数（ただし、mが２～５の場合Yは同一であっても異なっていてもよい）を示し、
nは１～５の整数（ただし、nが２～５の場合Zは同一であっても異なっていてもよい）を示し、
pは０～２の整数を示し、
qは０～５の整数（ただし、qが２～５の場合R^4は同一であっても異なっていてもよい）を示し、
rは０～４の整数（ただし、rが２～４の場合R^4は同一であっても異なっていてもよい）を示す。〕で表わされるセミカルバゾン誘導体。

【請求項２】　Xが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニルオキシ基又はC_{2-6}アルコキシカルボニル基を示し、
Yが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}アルキルスルホニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニル基、C_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニルオキシ基又は隣あった炭素原子間で形成する$-OCF_2O-$基若しくは$-OCF_2CF_2O-$基を示し、
Zが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}アルキルスルフィニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルフィニル基、C_{1-6}アルキルスルホニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニル基、C_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニルオキシ基又は隣あった炭素原子間で形成する$-OCF_2O-$基、$-OCF_2CF_2O-$基若しくは$-OCF_2CF_2-$基を示し、
R^1が水素原子、C_{1-6}アルキル基、C_{2-6}アルケニル基、C_{2-6}アルキニル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{2-6}アルコキシアルキル基、C_{2-6}アルキルカルボニル基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基、C_{2-6}ハロアルキルカルボニル基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、$R^5OC(O)N(R^6)S-$基、$R^6(R^7)NS-$基又は$(R^4)_q$によって置換されていてもよいベンジル基を示し、
R^2及びR^3が各々独立して水素原子又はC_{1-6}アルキル基を示し、
l及びmが各々独立して０～２の整数を示し、nが１～３の整数を示す請求項１記載のセミカルバゾン誘導体。

【請求項３】　Xが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基又はC_{2-6}アルコキシカルボニル基であり、かつその置換位置は、３位、４位、３位と４位又は３位と５位を示し、
Yが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基又はC_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基であり、かつその置換位置は、３位、４位又は、３位と４位を示し、

Ｚが、ハロゲン原子、シアノ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基又はC_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基であり、かつその置換位置は3位、４位又は3位と４位を示し、
R^1は水素原子を示し、
R^2、R^3が各々独立して水素原子又はC_{1-6}アルキル基を示し、
lおよびmが各々独立して０〜２の整数を示し、nが１を示す請求項２記載のセミカルバゾン誘導体。

【請求項４】　Ｘが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基又はC_{2-6}アルコキシカルボニル基であり、かつその置換位置は、３位、４位、３位と４位又は3位と５位を示し、
Ｙが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基又はC_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基であり、かつその置換位置は、３位、４位又は、３位と４位を示し、
Ｚが、ハロゲン原子、シアノ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基又はC_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基であり、かつその置換位置は3位、４位又は3位と４位を示し、
R^1が、C_{1-6}アルキル基、C_{2-6}アルケニル基、C_{2-6}アルキニル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{2-6}アルコキシアルキル基、C_{2-6}アルキルカルボニル基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基、C_{2-6}ハロアルキルカルボニル基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、$R^5OC(O)N(R^6)S$−基、$R^6(R^7)NS$−基又は$(R^4)_q$によって置換されていてもよいベンジル基を示し、
R^2、R^3が各々独立して水素原子又はC_{1-6}アルキル基を示し、
lおよびmが各々独立して０〜２の整数を示し、nが１を示す請求項２記載のセミカルバゾン誘導体。

【請求項５】　Ｗが酸素原子を示し、
Ｘが、ハロゲン原子、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基又はC_{1-6}ハロアルコキシ基であり、かつその置換位置は、３位を示し、
Ｙが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}ハロアルコキシ基又はC_{1-6}ハロアルキルチオ基であり、かつその置換位置は４位を示し、
Ｚが、ハロゲン原子、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}ハロアルコキシ基又はC_{1-6}ハロアルキルチオ基であり、かつその置換位置は４位を示し、
R^2、R^3が水素原子を示し、
l、m及びnが１を示す請求項3記載のセミカルバゾン誘導体。

【請求項６】　Ｗが酸素原子を示し、
Ｘが、ハロゲン原子、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基又はC_{1-6}ハロアルコキシ基であり、かつその置換位置は、３位を示し、
Ｙが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}ハロアルキル基又はC_{1-6}ハロアルコキシ基であり、かつその置換位置は４位を示し、
Ｚが、ハロゲン原子、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}ハロアルコキシ基又はC_{1-6}ハロアルキルチオ基であり、かつその置換位置は４位を示し、
R^2、R^3が水素原子を示し、
l、m及びnが１を示す請求項４記載のセミカルバゾン誘導体。

【請求項７】　請求項１記載のセミカルバゾン誘導体の１種又は２種以上を有効成分として含有する有害生物防除剤。

【発明の詳細な説明】

【０００１】

【発明の属する技術分野】本発明は新規なセミカルバゾン誘導体ならびに該誘導体を有効成分として含有する有害生物防除剤に関するものである。

【０００２】

【従来の技術】従来、ベンズアミドのセミカルバゾン誘導体に関してはヨーロピアン・ジャーナル・オブ・メディシナル・ケミストリー〔Ｅｕｒ．Ｊ．Ｍｅｄ．Ｃｈｅｍ．，２６，２７３（１９９１）〕に$4-RC_6H_4C=(NHC_6H_4R'-4)NNHCWNHR''$（ただし$R=H, MeO, Me, Cl, NO_2$；$R'=H, MeO, Me, Cl$；$R''=Ph$；$W=O, S$）である化合物が知られているが、Ｒ″は無置換のフェニルのみで、置換フェニルは新規である。また、この文献には医薬としての活性は示されているが、有害生物に対する活性は何ら開示されていない。

【０００３】

【発明が解決しようとする課題】殺虫剤の長年にわたる使用により、近年、害虫が抵抗性を獲得し、従来の殺虫剤による防除が困難になっている。また殺虫剤の一部は毒性が高く、あるものは残留性により生態系を乱しつつある。よって低毒性かつ低残留性の新規な殺虫剤の開発が常に期待されている。

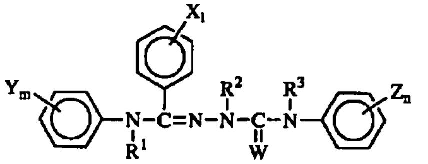
【０００４】本発明者らはセミカルバゾン誘導体について鋭意研究を重ねた結果、新規なベンズアニリドのセミカルバゾン誘導体が低薬量で優れた殺虫活性を示し、かつホ乳動物、魚類および益虫に対してはほとんど悪影響がない極めて有用な化合物であることを見出し本発明を完成した。

【０００５】

【課題を解決するための手段】本発明は一般式（Ｉ）

【０００６】

【化２】



（I）

【0007】〔式中、Wは酸素原子又はイオウ原子を示し、X、Y、Zは各々独立してハロゲン原子、水酸基、シアノ基、ニトロ基、SCN基、トリメチルシリル基、R^8、OR^8、$S(O)_pR^8$基、$OS(O)_2R^8$基、$OC(O)R^8$基、$C(O)R^8$基、CO_2R^8基、$C(O)N(R^8)R^9$基、$SO_2N(R^8)R^9$基、$NHC(O)R^8$基、$N(R^8)R^9$基又は隣あった炭素原子間で形成する-CH=CH-CH=CH-基、$-OCH_2O-$基、$-OCH_2CH_2O-$基、$-OCF_2O-$基、$-OCF_2CF_2O-$基若しくは$-OCF_2CF_2-$基を示し、R^1、R^2、R^3は各々独立して水素原子、C_{1-6}アルキル基、C_{2-6}アルケニル基、C_{2-6}アルキニル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{2-6}アルコキシアルキル基、C_{2-6}アルキルカルボニル基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基、C_{2-6}ハロアルキルカルボニル基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、$R^5OC(O)N(R^6)S-$基、$R^6(R^7)NS-$基又は$(R^4)_q$によって置換されていてもよいベンジル基を示し、R^4はハロゲン原子、水酸基、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}アルキルスルホニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニル基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基、アミノ基又はジC_{1-6}アルキルアミノ基を示し、R^5、R^6及びR^7は各々独立してC_{1-6}アルキル基、$(R^4)_q$によって置換されていてもよいフェニル基又は$(R^4)_q$によって置換されていてもよいベンジル基を示し、R^8はC_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{2-6}アルケニル基、C_{2-6}ハロアルケニル基、C_{2-6}アルキニル基、C_{2-6}ハロアルキニル基、C_{3-6}シクロアルキル基、C_{3-6}ハロシクロアルキル基、C_{4-7}シクロアルキルアルキル基、C_{2-6}アルコキシアルキル基、C_{2-6}アルキルチオアルキル基、C_{2-6}アルコキシカルボニルアルキル基、C_{2-6}シアノアルキル基、$(R^4)_q$によって置換されていてもよいフェニル基、$(R^4)_q$によって置換されていてもよいベンジル基又は$(R^4)_r$によって置換されていてもよいピリジル基を示し、R^9は水素原子又はC_{1-6}アルキル基を示し、lは0～5の整数（ただし、lが2～5の場合Xは同一であっても異なっていてもよい）を示し、mは0～5の整数（ただし、mが2～5の場合Yは同一であっても異なっていてもよい）を示し、nは1～5の整数（ただし、nが2～5の場合Zは同一であっても異なっていてもよい）を示し、pは0～2の整数を示し、qは0～5の整数（ただし、qが2～5の場合R^4は同一であっても異なっていてもよい）を示し、rは0～4の整数（ただし、rが2～4の場合R^4は同一であっても異なっていてもよい）を示す。〕で表わされるセミカルバゾン誘導体及び該誘導体の1種又は2種以上を有効成分として含有する有害生物防除剤に関するものである。

【0008】本明細書において示した各置換基の例を以下に示す。なお、各置換基のうち炭素鎖は、直鎖、分岐鎖又は環状の何れでもよい。以下、ｎ－はノルマル、ｉ－はイソ、ｓｅｃ－はセカンダリー、ｔ－はターシャリー、ｃ－はシクロを意味する。

【0009】C_{1-6}アルキル基としては、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｉ－プロピル基、ｃ－プロピル基、ｎ－ブチル基、ｉ－ブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔ－ブチル基、ｃ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、ｃ－ペンチル基、ｎ－ヘキシル基、ｃ－ヘキシル基等が挙げられる。

【0010】C_{2-6}アルケニル基としては、エテニル基、２－プロペニル基、２－メチル－２－プロペニル基、２－ブテニル基等が挙げられる。

【0011】C_{2-6}アルキニル基としては、エチニル基、２－プロピニル基、２－ブチニル基等が挙げられる。

【0012】C_{2-6}アルコキシアルキル基としては、メトキシメチル基、エトキシメチル基、１－メトキシエチル基等が挙げられる。

【0013】C_{2-6}アルキルカルボニル基としては、メチルカルボニル基、エチルカルボニル基、ｎ－プロピルカルボニル基、ｉ－プロピルカルボニル基、ｃ－プロピルカルボニル基、ｎ－ブチルカルボニル基、ｉ－ブチルカルボニル基、ｓｅｃ－ブチルカルボニル基、ｔ－ブチルカルボニル基、ｃ－ブチルカルボニル基等が挙げられる。

【0014】C_{2-6}アルコキシカルボニル基としては、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、ｎ－プロポキシカルボニル基、ｉ－プロポキシカルボニル基、ｃ－プロポキシカルボニル基、ｎ－ブトキシカルボニル基、ｉ－ブトキシカルボニル基、ｓｅｃ－ブトキシカルボニル基、ｔ－ブトキシカルボニル基、ｃ－ブトキシカルボニル基等が挙げられる。

【0015】ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられる。

【0016】Wとしては酸素原子とイオウ原子が挙げられるが、好ましくは酸素原子が挙げられる。

【0017】Ｘ、Ｙ、Ｚとしては各々独立してハロゲン原子、水酸基、シアノ基、ニトロ基、ＳＣＮ基、トリメチルシリル基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{2-6}アルケニル基、C_{2-6}ハロアルケニル基、C_{2-6}アルキニル基、C_{2-6}ハロアルキニル基、C_{3-6}シクロアルキル基、C_{3-6}ハロシクロアルキル基、C_{4-7}シクロアルキルアルキル基、C_{2-6}アルコキシアルキル基、C_{2-6}アルキルチオアルキル基、C_{2-6}アルコキシカルボニルアルキル基、C_{2-6}シアノアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{2-6}アルケニルオキシ基、C_{2-6}ハロアルケニルオキシ基、C_{2-6}アルキニルオキシ基、C_{2-6}ハロアル

キニルオキシ基、C_{3-6}シクロアルキルオキシ基、C_{3-6}ハロシクロアルキルオキシ基、C_{4-7}シクロアルキルアルキルオキシ基、C_{2-6}アルコキシアルキルオキシ基、C_{2-6}アルキルチオアルキルオキシ基、C_{3-6}アルコキシカルボニルアルキルオキシ基、C_{2-6}シアノアルキルオキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{2-6}アルケニルチオ基、C_{2-6}ハロアルケニルチオ基、C_{2-6}アルキニルチオ基、C_{2-6}ハロアルキニルチオ基、C_{3-6}シクロアルキルチオ基、C_{3-6}ハロシクロアルキルチオ基、C_{4-7}シクロアルキルアルキルチオ基、C_{2-6}アルコキシアルキルチオ基、C_{2-6}アルキルチオアルキルチオ基、C_{2-6}アルコキシカルボニルアルキルチオ基、C_{2-6}シアノアルキルチオ基、C_{1-6}アルキルスルフィニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルフィニル基、C_{2-6}アルケニルスルフィニル基、C_{2-6}ハロアルケニルスルフィニル基、C_{2-6}アルキニルスルフィニル基、C_{2-6}ハロアルキニルスルフィニル基、C_{3-6}シクロアルキルスルフィニル基、C_{3-6}ハロシクロアルキルスルフィニル基、C_{4-7}シクロアルキルアルキルスルフィニル基、C_{2-6}アルコキシアルキルスルフィニル基、C_{2-6}アルキルチオアルキルスルフィニル基、C_{1-6}アルキルスルホニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニル基、C_{2-6}アルケニルスルホニル基、C_{2-6}ハロアルケニルスルホニル基、C_{2-6}アルキニルスルホニル基、C_{2-6}ハロアルキニルスルホニル基、C_{3-6}シクロアルキルスルホニル基、C_{3-6}ハロシクロアルキルスルホニル基、C_{4-7}シクロアルキルアルキルスルホニル基、C_{2-6}アルコキシアルキルスルホニル基、C_{2-6}アルキルチオアルキルスルホニル基、C_{2-6}アルコキシカルボニルアルキルスルホニル基、C_{2-6}シアノアルキルスルホニル基、C_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニルオキシ基、C_{3-6}シクロアルキルスルホニルオキシ基、C_{3-6}ハロシクロアルキルスルホニルオキシ基、C_{2-6}シアノアルキルスルホニルオキシ基、C_{2-7}アルキルカルボニルオキシ基、C_{2-7}ハロアルキルカルボニルオキシ基、C_{4-7}シクロアルキルカルボニルオキシ基、C_{4-7}ハロシクロアルキルカルボニルオキシ基、C_{3-7}シアノアルキルカルボニルオキシ基、C_{2-7}アルキルカルボニル基、C_{2-7}ハロアルキルカルボニル基、C_{4-7}シクロアルキルカルボニル基、C_{4-7}ハロシクロアルキルカルボニル基、C_{3-7}シアノアルキルカルボニル基、C_{2-7}アルコキシカルボニル基、C_{2-7}ハロアルコキシカルボニル基、C_{4-7}シクロアルキルオキシカルボニル基、C_{4-7}ハロシクロアルキルオキシカルボニル基、C_{3-7}シアノアルキルオキシカルボニル基、モノC_{1-6}アルキルアミノカルボニル基、モノC_{1-6}ハロアルキルアミノカルボニル基、ジC_{1-6}アルキルアミノカルボニル基、ジC_{1-6}ハロアルキルアミノカルボニル基、モノC_{1-6}アルキルアミノスルホニル基、モノC_{1-6}ハロアルキルアミノスルホニル基、ジC_{1-6}アルキルアミノスルホニル基、ジC_{1-6}ハロアルキルアミノスルホニル基、アミノカルボニル基、アミノスルホニル基、ホルミルアミノ基、C_{2-7}アルキルカルボニルアミノ基、C_{2-7}ハロアルキルカルボニルアミノ基、アミノ基、モノC_{1-6}アルキルアミノ基、モノC_{1-6}ハロアルキルアミノ基、ジC_{1-6}アルキルアミノ基、ジC_{1-6}ハロアルキルアミノ基、隣あった炭素原子間で形成する$-CH=CH-CH=CH-$基、$-OCH_2O-$基、$-OCH_2CH_2O-$基、$-OCF_2O-$基、$-OCF_2CF_2O-$基若しくは$-OCF_2CF_2-$基、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいフェノキシ基、置換されていてもよいフェニルチオ基、置換されていてもよいフェニルスルフィニル基、置換されていてもよいフェニルスルホニル基、置換されていてもよいフェニルスルホニルオキシ基、置換されていてもよいフェニルカルボニルオキシ基、置換されていてもよいフェニルカルボニル基、置換されていてもよいフェノキシカルボニル基、置換されていてもよいフェニルアミノカルボニル基、置換されていてもよいフェニルスルホニルアミノ基、置換されていてもよいフェニルカルボニルアミノ基、置換されていてもよいフェニルアミノ基、置換されていてもよいベンジル基、置換されていてもよいベンジルオキシ基、置換されていてもよいベンジルチオ基、置換されていてもよいベンジルスルフィニル基、置換されていてもよいベンジルスルホニル基、置換されていてもよいベンジルスルホニルオキシ基、置換されていてもよいベンジルカルボニルオキシ基、置換されていてもよいベンジルカルボニル基、置換されていてもよいベンジルオキシカルボニル基、置換されていてもよいベンジルアミノカルボニル基、置換されていてもよいベンジルスルホニルアミノ基、置換されていてもよいベンジルカルボニルアミノ基、置換されていてもよいベンジルアミノ基、置換されていてもよいピリジル基、置換されていてもよいピリジルオキシ基、置換されていてもよいピリジルチオ基、置換されていてもよいピリジルスルフィニル基、置換されていてもよいピリジルスルホニル基、置換されていてもよいピリジルスルホニルオキシ基、置換されていてもよいピリジルカルボニルオキシ基、置換されていてもよいピリジルカルボニル基、置換されていてもよいピリジルオキシカルボニル基、置換されていてもよいピリジルアミノカルボニル基、置換されていてもよいピリジルスルホニルアミノ基、置換されていてもよいピリジルカルボニルアミノ基又は置換されていてもよいピリジルアミノ基（ただし置換されていてもよい置換基としては、ハロゲン原子、水酸基、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}アルキルスルホニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニル基、C_{1-6}アルコキシカルボニル基、アミノ基又はジC_{1-6}アルキルアミノ基が挙げられる。）が挙げられる。

【0018】Xとして好ましくは、ハロゲン原子、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニルオキシ基が挙げられる。

【００１９】Ｙとして好ましくは、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}アルキルスルホニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニルオキシ基又は隣あった炭素原子間で形成する$-OCF_2O-$基若しくは$-OCF_2CF_2O-$基が挙げられる。

【００２０】Ｚとして好ましくは、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}アルキルスルフィニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルフィニル基、C_{1-6}アルキルスルホニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニル基、C_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニルオキシ基又は隣あった炭素原子間で形成する$-OCF_2O-$基、$-OCF_2CF_2O-$基若しくは$-OCF_2CF_2-$基が挙げられる。

【００２１】R^1、R^2及びR^3としては、水素原子、C_{1-6}アルキル基、C_{2-6}アルケニル基、C_{2-6}アルキニル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{2-6}アルコキシアルキル基、C_{2-6}アルキルカルボニル基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基、C_{2-6}ハロアルキルカルボニル基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{2-12}ジアルキルアミノチオ基、C_{3-12}（アルキル）アルコキシカルボニルアミノチオ基又は置換されていてもよいベンジル基（ただし、置換されていてもよい置換基としては、ハロゲン原子、水酸基、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}アルキルスルホニル基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基、アミノ基又はジC_{1-6}アルキルアミノ基が挙げられる）が挙げられる。

【００２２】R^1、R^2及びR^3として好ましくは、水素原子又はC_{1-6}アルキル基が挙げられる。

【００２３】lは０～２の整数が好ましく、１がより好ましい。

【００２４】mは０～２の整数が好ましく、１がより好ましい。

【００２５】nは１～３の整数が好ましく、１がより好ましい。

【００２６】好ましい本発明化合物としては、以下に挙げる化合物が挙げられる。

【００２７】（１）Ｘが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニルオキシ基又はC_{2-6}アルコキシカルボニル基を示し、Ｙが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}アルキルスルホニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニル基、C_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニルオキシ基又は隣あった炭素原子間で形成する$-OCF_2O-$基若しくは$-OCF_2CF_2O-$基を示し、Ｚが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{1-6}アルキルスルフィニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルフィニル基、C_{1-6}アルキルスルホニル基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニル基、C_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基、C_{1-6}ハロアルキルスルホニルオキシ基又は隣あった炭素原子間で形成する$-OCF_2O-$基、$-OCF_2CF_2O-$基若しくは$-OCF_2CF_2-$基を示し、R^1が水素原子、C_{1-6}アルキル基、C_{2-6}アルケニル基、C_{2-6}アルキニル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{2-6}アルコキシアルキル基、C_{2-6}アルキルカルボニル基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基、C_{2-6}ハロアルキルカルボニル基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、$R^5OC(O)N(R^6)S-$基、$R^6(R^7)NS-$基又は$(R^4)_q$によって置換されていてもよいベンジル基を示し、R^2及びR^3が各々独立して水素原子又はC_{1-6}アルキル基を示し、l及びmが各々独立して０～２の整数を示し、nが１～３の整数を示すセミカルバゾン誘導体。

（２）Ｘが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基又はC_{2-6}アルコキシカルボニル基であり、かつその置換位置は、３位、４位、３位と４位又は３位と５位を示し、Ｙが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基又はC_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基であり、かつその置換位置は、３位、４位又は、３位と４位を示し、Ｚが、ハロゲン原子、シアノ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基又はC_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基であり、かつその置換位置は３位、４位又は３位と４位を示し、R^1は水素原子を示し、R^2、R^3が各々独立して水素原子又はC_{1-6}アルキル基を示し、lおよびmが各々独立して０～２の整数を示し、nが１を示す上記（１）記載のセミカルバゾン誘導体。

（３）Ｘが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基又はC_{2-6}アルコキシカルボニル基であり、かつその置換位置は、３位、４位、３位と４位又は３位と５位を示し、Ｙが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基又はC_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基であ

り、かつその置換位置は、3位、4位又は、3位と4位を示し、Zが、ハロゲン原子、シアノ基、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基、C_{1-6}ハロアルコキシ基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基又はC_{1-6}アルキルスルホニルオキシ基であり、かつその置換位置は3位、4位又は3位と4位を示し、R^1が、C_{1-6}アルキル基、C_{2-6}アルケニル基、C_{2-6}アルキニル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{2-6}アルコキシアルキル基、C_{2-6}アルキルカルボニル基、C_{2-6}アルコキシカルボニル基、C_{2-6}ハロアルキルカルボニル基、C_{1-6}アルキルチオ基、C_{1-6}ハロアルキルチオ基、$R^5OC(O)N(R^6)S$-基、$R^6(R^7)NS$-基又は$(R^4)_q$によって置換されていてもよいベンジル基を示し、R^2、R^3が各々独立して水素原子又はC_{1-6}アルキル基を示し、lおよびmが各々独立して0～2の整数を示し、nが1を示す上記（1）記載のセミカルバゾン誘導体。

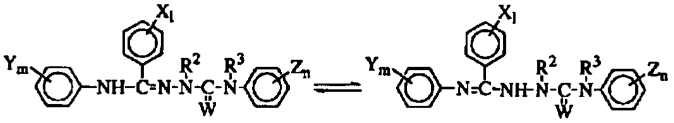
（4）Wが酸素原子を示し、Xが、ハロゲン原子、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基又はC_{1-6}ハロアルコキシ基であり、かつその置換位置は、3位を示し、Yが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}ハロアルコキシ基又はC_{1-6}ハロアルキルチオ基であり、かつその置換位置は4位を示し、Zが、ハロゲン原子、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}ハロアルコキシ基又はC_{1-6}ハロアルキルチオ基であり、かつその置換位置は4位を示し、R^2、R^3が水素原子を示し、l、m及びnが1を示す上記（2）記載のセミカルバゾン誘導体。

（5）Wが酸素原子を示し、Xが、ハロゲン原子、C_{1-6}アルキル基、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}アルコキシ基又はC_{1-6}ハロアルコキシ基であり、かつその置換位置は、3位を示し、Yが、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C_{1-6}ハロアルキル基又はC_{1-6}ハロアルコキシ基であり、かつその置換位置は4位を示し、Zが、ハロゲン原子、C_{1-6}ハロアルキル基、C_{1-6}ハロアルコキシ基又はC_{1-6}ハロアルキルチオ基であり、かつその置換位置は4位を示し、R^2、R^3が水素原子を示し、l、m及びnが1を示す上記（3）記載のセミカルバゾン誘導体。

【0028】尚、本発明に包含される化合物の中で不斉炭素原子を有する化合物の場合には、光学活性な化合物（＋）体及び（－）体が含まれる。更に、立体配置異性体が存在する場合には、シス体及びトランス体が含まれる。又、本発明化合物はR^2が水素原子の時、下記に示す互変異性体の存在が考えられるが、それらの構造も包含する。

【0029】

【化3】



【0030】本発明において有害生物防除剤とは、特に害虫防除剤を意味する。本発明化合物は極めて低い薬剤濃度で各種の有害な害虫に対して効力を示す。その害虫としては、例えば、ツマグロヨコバイ、トビイロウンカ、モモアカアブラムシ、ニジュウヤホシテントウ、ハスモンヨトウ、コブノメイガ、コナガ、ヨトウガ、モンシロチョウ、カブラヤガ、チャノコカクモンハマキ、チャハマキ、タバコバットワーム、ヨーロピアンコーンボーラー、フォールアーミーワーム、コーンイヤーワーム、サザンコーンルートワーム、ノーザンコーンルートワーム、ウェスタンコーンルートワーム等の農業害虫、ナミハダニ、ミカンハダニ、カンザワハダニ等のハダニ類、アカイエカ、イエバエ、チャバネゴキブリ、アリ、ノミ、シラミ等の衛生害虫、コクゾウムシ、コクヌストモドキ、スジマダラメイガ等の貯穀害虫、シロアリのような家屋害虫、ダニ、ノミ、シラミ等の家畜害虫、コナダニ、ヒョウヒダニ、ツメダニ等の屋内塵性ダニ、ナメクジ、カタツムリ等の軟体動物等が挙げられる。すなわち、本発明化合物は直翅目、半翅目、鱗翅目、鞘翅目、膜翅目、双翅目、シロアリ目およびダニ・シラミ類の害虫を低濃度で有効に防除できる。一方、本発明化合物はホ乳類、魚類、甲殻類および益虫に対してはほとんど悪影響がない極めて有用な化合物であることを見出し、本発明を完成した。

【0031】

【発明の実施の形態】

【0032】次に、本発明化合物の製造法について説明する。本発明化合物は新規なセミカルバゾン誘導体であり、代表的な製造法を以下に具体的に説明する。

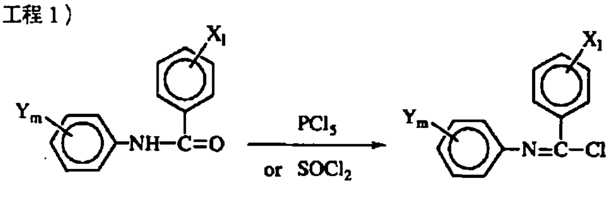
【0033】各方法（A法～F法）において、W、X、Y、Z、R^1、R^2、R^3、R^4、k、l、m及びnは前記と同じ意味を示し、L^1、L^2及びL^3は、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、アルキルスルホネート基又はアリールスルホネート基のような良好な脱離基を示す。

【0034】A法

【0035】

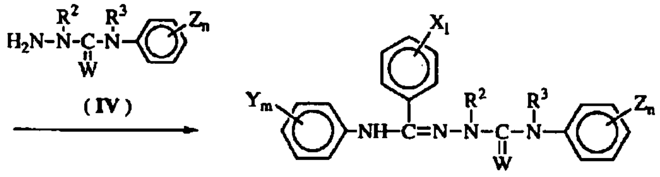
【化4】

（工程１）



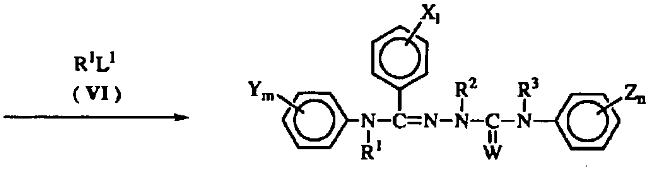
（II）　（III）

（工程２）



（V）

（工程３）



（I）

【００３６】化合物（II）と五塩化リンとを不活性な溶媒中又は溶媒なしで反応させるか、又は化合物（II）を不活性な溶媒中又は溶媒なしで塩化チオニルと反応させることにより化合物（III）が得られる。塩化チオニルと反応させる場合は、ジメチルホルムアミドを加えると反応は、より良好に進行する。つづいて化合物（III）と化合物（IV）を塩基の存在下又は不存在下、不活性な溶媒中で反応させることにより本発明化合物（Ｖ）（化合物（Ｉ）においてR^1が水素原子）が得られる。さらに本発明化合物（Ｖ）と化合物（VI）を塩基の存在下、不活性な溶媒中で反応させることにより本発明化合物（Ｉ）を得ることができる。

【００３７】工程１において用いられる溶媒としてはベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、四塩化炭素、１，１，２－トリクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類が挙げられる。トルエン中で少し過剰の五塩化リンを用いるのが好ましい。反応温度は０℃から反応混合物の還流温度までの任意の温度を設定できるが、６０℃から還流温度で行うのが好ましい。

【００３８】工程２で用いられる塩基としては、ナトリウムエトキシド、カリウムターシャリーブトキシドのようなアルカリ金属アルコキシド類、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属水酸化物、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム等のアルカリ金属炭酸塩、水素化ナトリウム、水素化カリウム等のアルカリ金属水素化物、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基等が挙げられる。用いられる溶媒としては、反応の進行を阻害しないものであれば良く、例えばメタノール、エタノール等の低級アルコール類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、１，２－ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、１，４－ジオキサン等のエーテル類、ジクロロメタン、１，２－ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド類、アセトニトリル、ジメチルスルホキシドおよび水等が挙げられる。これらの不活性溶媒は単独で使用してもよく、また、混合して使用することもできる。一般的には塩基として、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基を用い、溶媒としてベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類又はテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル等のエーテル類を用いるのが好ましい。反応温度は－６０℃から反応混合物の還流温度までの任意の温度を設定することができるが、０℃から還流温度までで行うのが好ましい。

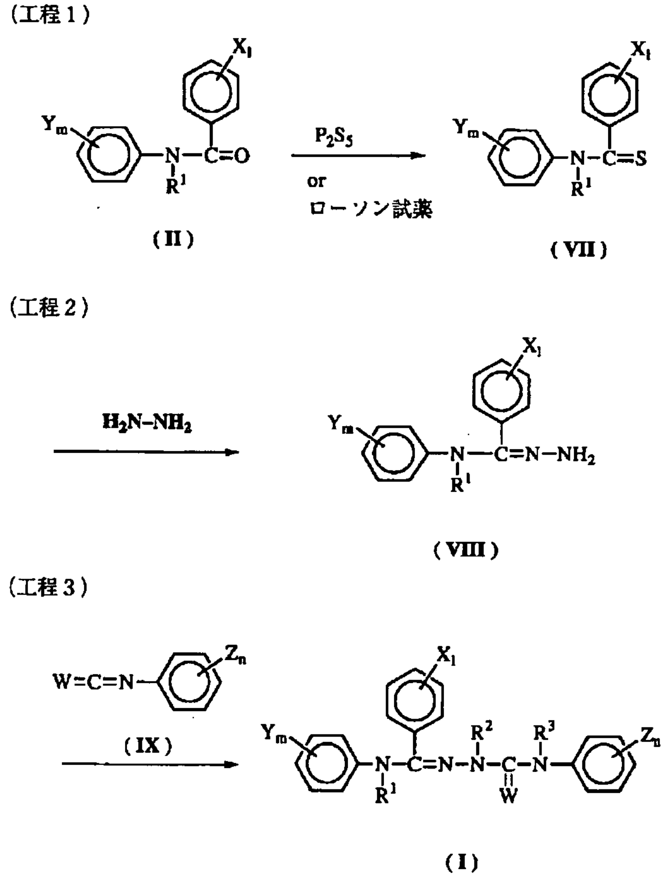
【００３９】工程３で用いられる塩基としては、ナトリウムエトキシド、カリウムターシャリーブトキシドのようなアルカリ金属アルコキシド類、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属水酸化物、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム等のアルカリ金属炭酸塩、水素化ナトリウム、水素化カリウム等のア

ルカリ金属水素化物、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基等が挙げられる。用いられる溶媒としては、反応の進行を阻害しないものであれば良く、例えばメタノール、エタノール等の低級アルコール類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、１，２－ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、１，４－ジオキサン等のエーテル類、ジクロロメタン、１，２－ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド類、アセトニトリル、ジメチルスルホキシドおよび水等が挙げられる。これらの不活性溶媒は単独で使用してもよく、また、混合して使用することもできる。一般的にはテトラヒドロフランやジメチルホルムアミド等の極性溶媒中で、塩基として水素化ナトリウム、水素化カリウム、カリウムターシャリーブトキシド又は水酸化カリウムを用いるのが好ましい。反応温度は－６０℃から反応混合物の還流温度までの任意の温度を設定することができるが、０℃から９０℃までで行うのが好ましい。

【００４０】Ｂ法

【００４１】

【化５】



【００４２】化合物（II）と五硫化二リンを不活性な溶媒中又は溶媒なしで反応させるか、又は化合物（II）をローソン試薬と不活性な溶媒中又は溶媒なしで反応させることにより、化合物（VII）が得られる。つづいて化合物（VII）とヒドラジンを塩基の存在下又は不存在下、不活性な溶媒中又は溶媒なしで反応させることにより化合物（VIII）を得ることができる。さらに、化合物（VIII）と化合物（IX）を不活性な溶媒中塩基の存在下又は不存在下反応させることにより、本発明化合物（Ｉ）（$R^2=R^3=H$である化合物）を得ることができる。化合物（VIII）については、Ａ法の工程１で得られた化合物（III）にヒドラジンを反応させても得ることができる。

【００４３】工程１において用いられる溶媒としては、反応の進行を阻害しないものであれば良く、例えばベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、１，２－ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、１，４－ジオキサン等のエーテル類、ジクロロメタン、１，２－ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド類、アセトニトリル、ピリジン、ジメチルスルホキシドおよび水等が挙げられる。これらの不活性溶媒は単独で使用してもよく、また、混合して使用することもできる。一般的には、ピリジン中、少し過剰の五硫化二リン

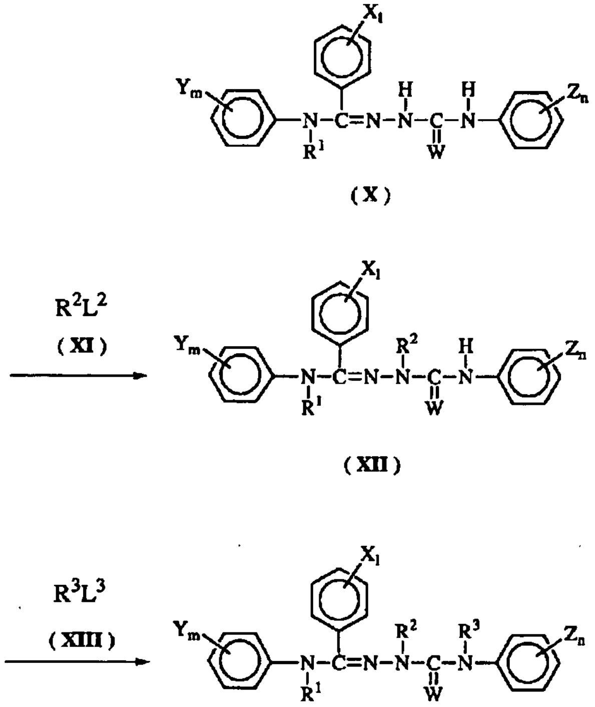
を用いるのがよい。反応温度は0℃から反応混合物の還流温度までの任意の温度を設定することができるが、60℃から還流温度までで行うのが好ましい。

【0044】工程3で用いられる塩基としては、ナトリウムエトキシド、カリウムターシャリーブトキシドのようなアルカリ金属アルコキシド類、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属水酸化物、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム等のアルカリ金属炭酸塩、水素化ナトリウム、水素化カリウム等のアルカリ金属水素化物、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基等が挙げられる。用いられる溶媒としては、反応の進行を阻害しないものであれば良く、例えばメタノール、エタノール等の低級アルコール類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、1，2−ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、1，4−ジオキサン等のエーテル類、ジクロロメタン、1，2−ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド類、アセトニトリル、ジメチルスルホキシドおよび水等が挙げられる。これらの不活性溶媒は単独で使用してもよく、また、混合して使用することもできる。一般的には塩基としてトリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基を用い、溶媒としてジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素類を用いるのが好ましい。反応温度は0℃から反応混合物の還流温度までの任意の温度を設定することができるが、0℃から50℃までで行うのが好ましい。

【0045】C法

【0046】

【化6】



（X）

（XII）

（I）

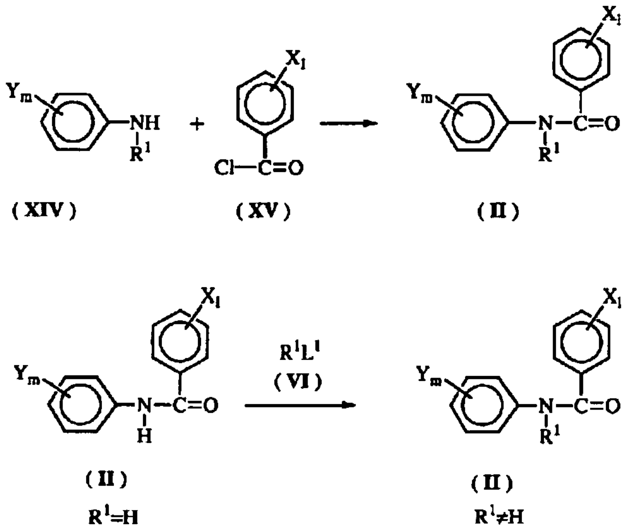
【0047】本法は、本発明化合物（Ｉ）において、$R^2 = R^3 =$ 水素原子である場合に、R^2、R^3 を導入する方法である。本発明化合物（Ｘ）と化合物（XI）を塩基の存在下、不活性な溶媒中で反応させることにより本発明化合物（XII）を得ることができる。つづいて、本発明化合物（XII）と化合物（XIII）を塩基の存在下、不活性な溶媒中で反応させることにより本発明化合物（Ｉ）が得られる。本反応において、用いられる塩基としてはナトリウムエトキシド、カリウムターシャリーブトキシドのようなアルカリ金属アルコキシド類、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属水酸化物、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム等のアルカリ金属炭酸塩、水素化ナトリウム、水素化カリウム等のアルカリ金属水素化物、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基等が挙げられる。用いられる溶媒としては、反応の進行を阻害しないものであれば良く、例えばメタノール、エタノール等の低級アルコール類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、1，2−ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、1，4−ジオキサン等のエーテル類、ジクロロメタン、1，2−ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド類、アセトニトリル、ジメチルスルホキシドおよび水等が挙げられる。これらの不活性溶媒は単独で使用しても

よく、また、混合して使用することもできる。一般的にはテトラヒドロフランやジメチルホルムアミド等の極性溶媒中で、塩基として水素化ナトリウム、水素化カリウム、カリウムターシャリーブトキシドまたは水酸化カリウムを用いるのが好ましい。反応温度は－６０℃から反応混合物の還流温度までの任意の温度を設定することができるが、０℃から９０℃までで行うのが好ましい。本反応においてR^2＝R^3の場合は２当量の化合物（XI）と２当量の塩基を用いることにより、化合物（XII）を単離することなく、本発明化合物（Ｉ）を得ることができる。

【００４８】Ｄ法

【００４９】

【化７】



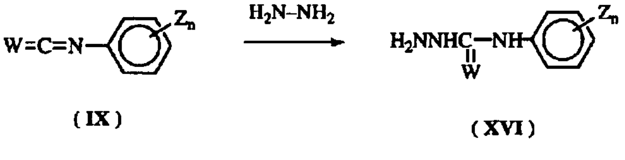
【００５０】出発原料の化合物（II）は化合物（XIV）と化合物（XV）を塩基の存在下、不活性な溶媒中で反応させることにより得られる。本法で用いられる塩基としては炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム等のアルカリ金属炭酸塩、水素化ナトリウム、水素化カリウム等のアルカリ金属水素化物、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基等が挙げられる。用いられる溶媒としては、反応の進行を阻害しないものであれば良く、例えばベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、１，２－ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、１，４－ジオキサン等のエーテル類、ジクロロメタン、１，２－ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド類、アセトニトリル、ジメチルスルホキシドおよび水等が挙げられる。これらの不活性溶媒は単独で使用してもよく、また、混合して使用することもできる。一般的には塩基として、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基を用い、溶媒としてベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類又はテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル等のエーテル類を用いるのが好ましい。反応温度は－６０℃から反応混合物の還流温度までの任意の温度を設定することができるが、０℃から１２０℃までで行うのが好ましい。

【００５１】化合物（II）において、R^1＝Ｈの場合、さらに化合物（VI）を塩基の存在下、不活性な溶媒中において反応させることにより、化合物（II）（R^1≠Ｈ）を得ることができる。

【００５２】Ｅ法

【００５３】

【化８】



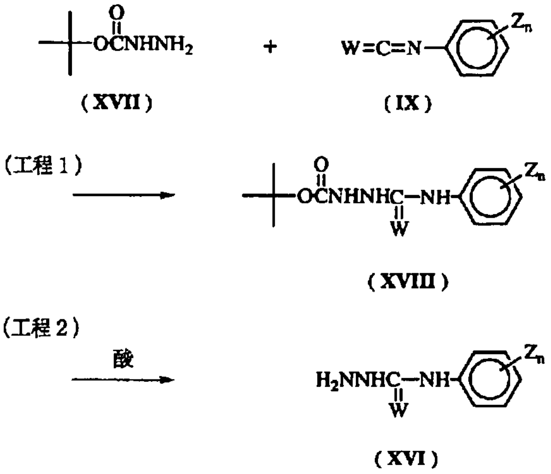
【００５４】本法は、R^2＝R^3＝水素原子である場合の出発原料（化合物（IV）のR^2＝R^3＝水素原子）の合成法である。化合物（IX）とヒドラジンを触媒の存在下又は不存在下、不活性な溶媒中で反応させることにより化合物（XVI）が得られる。本反応において用いられる触媒としては、トリエチレンジアミン、ジアザビシクロウンデセン等の有機塩基等が挙げられる。触媒の使用量は化合物（IX）に対して０．００１重量％から１０重量％までの任意の量を設定できるが、０．１重量％から１重量％が好ましい。溶媒としては反応の進行を阻害しないものであれば良く、例えば、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン等のエーテル類、ジクロロメタン、クロロホルム等のハロゲン化炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルア

セトアミド等のアミド類、アセトニトリル、ジメチルスルホキシドおよび水等が挙げられる。これらの不活性溶媒は単独で使用してもよく、また、混合して使用することもできる。反応温度は－６０℃から反応混合物の還流温度までの任意の温度を設定することができるが、０℃から５０℃で行うのが好ましい。この反応において反応物質のモル比には特に制限はないが化合物（XVI）を収率よく得るためには、化合物（IX）に対してヒドラジンを少し過剰に用いるのが好ましい。

【００５５】Ｆ法

【００５６】

【化９】



【００５７】本法は、Ｅ法の別法で、R^2＝R^3＝水素原子である場合の出発原料（化合物（IV）のR^2＝R^3＝水素原子）の合成法である。化合物（XVII）と化合物（IX）を触媒の存在下又は不存在下、不活性な溶媒中で反応させることにより化合物（XVIII）が得られる。本反応において用いられる触媒、溶媒及び温度等の反応条件はＥ法に準ずる。本法においては、当モルの化合物（XVII）と化合物（IX）を用いて収率よく化合物（XVIII）を得ることができるのが特徴である。工程２において、化合物（XVIII）を酸の存在下、不活性な溶媒中で反応させることにより、化合物（XVI）を得ることができる。用いられる酸としては、塩酸、硫酸等の無機酸、パラトルエンスルホン酸、トリフルオロ酢酸等の有機酸等が挙げられる。溶媒としては、反応の進行を阻害しないものであれば良く、例えば、メタノール、エタノール等の低級アルコール類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン等のエーテル類、ジクロロメタン、四塩化炭素等のハロゲン化炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド類、アセトニトリル、ジメチルスルホキシド、酢酸および水等が挙げられる。これらの不活性溶媒は単独で使用してもよく、また、混合して使用することもできる。一般的には、メタノール、エタノール等の低級アルコール中で過剰量の塩酸を用いるのが好ましい。反応温度は－６０℃から反応混合物の還流温度までの任意の温度を設定することができるが、０℃から反応混合物の還流温度で行うのが好ましい。

【００５８】各方法において、各反応物質のモル比には特に制限はないが、等モル又はそれに近い比率で反応を行うのが有利である。

【００５９】本発明化合物を精製する必要が生じた場合は、再結晶、カラムクロマトグラフィー、薄層クロマトグラフィー等の任意の精製方法によって分離、精製することができる。

【００６０】本発明化合物を有害生物防除剤として施用するにあたっては、一般には適当な担体、例えばクレー、タルク、ベントナイト、珪藻土、ホワイトカーボン等の固体担体あるいは水、アルコール類（イソプロパノール、ブタノール、ベンジルアルコール、フルフリルアルコール等）、芳香族炭化水素類（トルエン、キシレン等）、エーテル類（アニソール等）、ケトン類（シクロヘキサノン、イソホロン等）、エステル類（酢酸ブチル等）、酸アミド類（Ｎ－メチルピロリドン等）又はハロゲン化炭化水素類（クロルベンゼン等）などの液体担体と混用して適用することができ、所望により界面活性剤、乳化剤、分散剤、浸透剤、展着剤、増粘剤、凍結防止剤、固結防止剤、安定剤などを添加し、液剤、乳剤、水和剤、ドライフロアブル剤、フロアブル剤、粉剤、粒剤等任意の剤型にて実用に供することができる。

【００６１】また、本発明化合物は必要に応じて製剤時又は散布時に他種の除草剤、各種殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤、植物生長調節剤、共力剤、肥料、土壌改良剤などと混合施用しても良い。

【００６２】特に他の農薬あるいは植物ホルモンと混合施用することにより、施用薬量の減少による低コスト化、混合薬剤の相乗作用による殺虫スペクトラムの拡大や、より高い有害生物防除効果が期待できる。この際、同時に複数の公知農薬との組み合わせも可能である。本発明化合物と混合使用する農薬の種類としては、例えば、ファーム・ケミカルズ・ハンドブック（Farm Chemicals Handbook）１９９４年版に記載されている化合物などがある。

【００６３】本発明化合物の施用薬量は適用場面、施用時期、施用方法、栽培作物等により差異はあるが一般には有効成分量としてヘクタール（ha）当たり０．００５～５０ｋｇ程度が適当である。

【００６４】次に具体的に本発明化合物を用いる場合の製剤の配合例を示す。但し本発明の配合例は、これらのみに限定されるものではない。なお、以下の配合例において「部」は重量部を意味する。

【００６５】〔水和剤〕

本発明化合物・・・・・・・	５～８０部
固体担体　・・・・・・・	１０～８５部

界面活性剤 ・・・・・・・	1～10部
その他 ・・・・・・・	1～5　部

その他として、例えば固結防止剤などがあげられる。

【0066】〔乳　剤〕

本発明化合物・・・・・・・	1～30部
液体担体 ・・・・・・・	30～95部
界面活性剤 ・・・・・・・	5～15部

【0067】〔フロアブル剤〕

本発明化合物・・・・・・・	5～70部
液体担体 ・・・・・・・	15～65部
界面活性剤 ・・・・・・・	5～12部
その他 ・・・・・・・	5～30部

その他として、例えば凍結防止剤、増粘剤等があげられる。

【0068】〔粒状水和剤（ドライフロアブル剤）〕

本発明化合物・・・・・・・	20～90部
固体担体 ・・・・・・・	10～60部
界面活性剤 ・・・・・・・	1～20部

【0069】〔粒　剤〕

本発明化合物・・・・・・・	0.1～10部
固体担体 ・・・・・・・	90～99.99 部
その他 ・・・・・・・	1～5　部

【0070】〔粉　剤〕

本発明化合物・・・・・・・	0.01～30部
固体担体 ・・・・・・・	67～99.5　部
その他 ・・・・・・・	0～3　部

【0071】

【実施例】

実施例（合成例、製剤例、試験例）

以下、本発明について実施例（合成例、製剤例、試験例）を挙げて具体的に詳述する。

【0072】

【実施例】

実施例（合成例、製剤例、試験例）

以下、本発明について実施例（合成例、製剤例、試験例）を挙げて具体的に詳述する。

【0073】〔合成例〕本発明に包含される化合物は、以下に示した合成例に基づき製造したまたは製造することができるが、本発明はこれらの化合物にのみ限定されるものではない。

【0074】合成例1

N－（4－クロロフェニル）－4－クロロベンズアミド　4－トリフルオロメトキシフェニルセミカルバゾン（本発明化合物　No．1）

N－（4－クロロフェニル）－4－クロロベンズアミド1．0g及び五塩化リン1．2gを徐々に加熱溶解し、還流下で3時間攪拌した後、副生したオキシ塩化リンを減圧下で留去した。残留物及びN－（4－トリフルオロメトキシフェニル）ヒドラジンカルボキサミド1．00gをベンゼン20mlとテトラヒドロフラン20mlの混合溶媒に溶解し、室温で攪拌下、トリエチルアミン0．50gを滴下し、さらに室温で3時間攪拌した。反応混合物を氷水200ml中に加えた後、酢酸エチル100mlを加えて抽出した。有機層を水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下で溶媒を留去して粗生成物を2．05g得た。これを分取薄層クロマトグラフィーで精製後、さらにイソプロピルエーテルから再結晶化して目的物を0．38g得た。

融点：206．5－208．0℃

^{1}H-NMR(CDCl$_3$+DMSO-d$_6$)δ ppm:6.50-7.65(12H, m), 8.08(1H,s), 8.41(1H,s),9.51(1H, s).

【0075】参考例1

N－（4－クロロフェニル）－4－クロロベンズアミド

4－クロロアニリン3．3gとトリエチルアミン3．3gをベンゼン50mlに溶解し、氷冷下で攪拌下、4－クロロベンゾイルクロライド5．3gのベンゼン溶液20mlを滴下した後、さらに室温で1時間攪拌した。反応混合物を氷水200mlに加えた後、酢酸エチル200mlで抽出した。有機層を1規定塩酸、ついで飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下で溶媒を留去して、N－（4－クロロフェニル）－4－クロロベンズアミドを6．33g得た。

【0076】合成例2

N－（4－シアノフェニル）－N－メチル－3－フルオロベンズアミド　4－トリフルオロメトキシフェニルセミカルバゾン（本発明化合物No．173）

N－（4－シアノフェニル）－N－メチル－3－フルオロベンズアミドラゾン0．54g、4－トリフロオロメトキシフェニルイソシアネート0．41g及びトリエチルアミン2滴をジクロロメタン10mlに加え、室温で3日間攪拌した。その後、酢酸エチル100mlを加え、水で2回洗浄した後、減圧下で溶媒を留去した。残留物をイソプロピルエーテルで洗浄して、目的化合物0．57gを得た。

融点：210．0－213．0℃

【0077】参考例2

N－（4－シアノフェニル）－3－フルオロベンズアミド

4－アミノベンゾニトリル31．01g及びトリエチルアミン30．36gをベンゼン950mlに加え、氷冷下で攪拌しながら、3－フルオロベンゾイルクロリド39．64gのベンゼン溶液50mlを滴下した。滴下終了後、室温で一晩攪拌し、減圧下で溶媒を留去した。残留物を酢酸エチル500mlに溶解し、水で2回洗浄した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、減圧下で溶媒を留去した。残留物をジイソプロピルエーテルで洗浄して、目的化合物55．92gを得た。

融点：148．6－150．3℃

【0078】N－（4－シアノフェニル）－N－メチル－3－フルオロベンズアミド

水素化ナトリウム（純度５５％）０．５２ｇをジメチルホルムアミド１０ｍｌに加え、氷冷下撹拌しながらＮ－（４－シアノフェニル）－３－フルオロベンズアミド２．４０ｇを加えた。室温で１時間撹拌後、ヨウ化メチル２．１３ｇを加え、さらに室温で一晩撹拌した。その後、ジエチルエーテル１５０ｍｌを加え、飽和食塩水で２回洗浄した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、減圧下で溶媒を留去した。残留物をジイソプロピルエーテルから再結晶して、目的化合物１．８７ｇを得た。

融点：１０３．２－１０６．１℃

【００７９】Ｎ－（４－シアノフェニル）－Ｎ－メチル－３－フルオロベンゼンカルボチオアミド

Ｎ－（４－シアノフェニル）－Ｎ－メチル－３－フルオロベンズアミド１．８７ｇ及び五硫化二リン１．８０ｇをピリジン１０ｍｌに加え、加熱還流下２時間撹拌後、氷水１００ｍに加えた。水酸化カリウム水溶液でアルカリ性にした後、酢酸エチル１５０ｍｌを加え抽出した。有機層を希塩酸で２回洗浄した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、減圧下で溶媒を留去した。残留物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出溶媒：クロロホルム）で分離精製し、油状の目的化合物１．９９ｇを得た。

^{1}H-NMR(CDCl$_3$):δppm 3.9(s, 3H), 6.8-7.6(m, 8H).

【００８０】Ｎ－（４－シアノフェニル）－Ｎ－メチル－３－フルオロベンズアミドラゾン

Ｎ－（４－シアノフェニル）－Ｎ－メチル－３－フルオロベンゼンカルボチオアミド１．９９ｇ及びヒドラジン一水和物１．８５ｇをエタノール４０ｍｌに加え、加熱還流下３時間撹拌後、水１００ｍｌを加え、減圧下でエタノールを留去した。残留物に酢酸エチル１５０ｍｌを加え抽出し、有機層を水で２回洗浄した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、減圧下で溶媒を留去した。残留物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出溶媒：ヘキサン－酢酸エチル＝１：１）で分離精製し、目的化合物１．２７ｇを得た。

融点：１２９．５－１３１．０℃

【００８１】合成例３

【００８２】Ｎ－（４－シアノフェニル）－Ｎ－メチル－３－フルオロベンズアミド　４－（４－トリフルオロメトキシフェニル）－２－メチルセミカルバゾン（本発明化合物Ｎｏ．２１６）

水素化ナトリウム（純度５５％）０．２ｇをジメチルホルムアミド５ｍｌに加え、氷冷下撹拌しながらＮ－（４－シアノフェニル）－Ｎ－メチル－３－フルオロベンズアミド　４－トリフルオロメトキシフェニルセミカルバゾン１．０ｇ及びジメチルホルムアミド１０ｍｌの溶液を滴下した。室温で３０分撹拌後、ヨウ化メチル０．３６ｇ及びジメチルホルムアミド３ｍｌの溶液を加え、更に室温で３時間撹拌した。反応混合物を氷水中に注ぎ、生成した結晶をろ過し、水及びヘキサンで洗浄後乾燥した。更に酢酸エチル－ヘキサンで再結晶を行い、目的化合物０．１４ｇを得た。

融点：２０９．０－２１０．０℃

【００８３】参考例３

【００８４】Ｎ－（４－シアノフェニル）－３－フルオロベンゼンカルボチオアミド

Ｎ－（４－シアノフェニル）－３－フルオロベンズアミド９．６１ｇ及び五硫化二リン９．３４ｇをピリジン４０ｍｌに加え、加熱還流下２時間撹拌後、氷水４００ｍに加えた。水酸化カリウム水溶液でアルカリ性にし、析出した固体を沪別して乾燥後、ジイソプロピルエーテルで洗浄して、目的化合物８．１７ｇを得た。

【００８５】Ｎ－（４－シアノフェニル）－３－フルオロベンズアミドラゾン

Ｎ－（４－シアノフェニル）－３－フルオロベンゼンカルボチオアミド７．６９ｇ及びヒドラジン一水和物７．５１ｇをエタノール１５０ｍｌに加え、加熱還流下２時間撹拌後、水１５０ｍｌを加え、減圧下でエタノールを留去した。残留物に酢酸エチル３００ｍｌを加え抽出し、有機層を水で２回洗浄した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、減圧下で溶媒を留去した。残留物をジイソプロピルエーテルで洗浄して、目的化合物５．３３ｇを得た。

融点：１０４．０－１０５．０℃

【００８６】Ｎ－（４－シアノフェニル）－３－フルオロベンズアミドラゾン

Ｎ－（４－シアノフェニル）－３－フルオロベンズアミド９．６１ｇ及び五塩化リン９．１６ｇをトルエン４０ｍｌに加え、加熱還流下２時間撹拌後、減圧下で溶媒を留去した。残留物をベンゼン５０ｍｌに溶解し、室温で撹拌しながら、ヒドラジン一水和物６．０１ｇのベンゼン溶液５０ｍｌに滴下した。室温で一晩撹拌後、水１００ｍｌを加え、減圧下でベンゼンを留去した。残留物に酢酸エチル４００ｍｌを加え抽出し、有機層を水で２回洗浄した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、減圧下で溶媒を留去した。残留物をジイソプロピルエーテルで洗浄して、目的化合物４．８８ｇを得た。

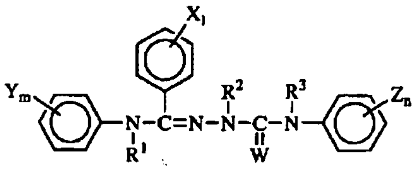
【００８７】本発明化合物は、上記製造法及び実施例に準じて合成することができる。このような化合物の例を第１表に表す。但し、本発明は、これらのみに限定されるわけではない。なお、表中の略号はそれぞれ以下の意味を表す。

Me：メチル基、Et：エチル基、Pr：プロピル基、Bu：ブチル基、Ph：フェニル基、Bn：ベンジル基

【００８８】第　１　表

【００８９】

【化１０】


(I)

【0090】
【表1】

No.	R^1	R^2	R^3	W	X$_1$	Y$_m$	Z$_n$	融点（℃）
1	H	H	H	O	H	H	4-OCF$_3$	160.0-163.0
2	H	H	H	O	3-F	H	4-OCF$_3$	243.0-246.0
3	H	H	H	O	3-Cl	H	4-OCF$_3$	186.0-187.0
4	H	H	H	O	3-Br	H	4-OCF$_3$	180.0-183.0
5	H	H	H	O	3-CF$_3$	H	4-OCF$_3$	157.0-160.0
6	H	H	H	O	3-OMe	H	4-OCF$_3$	
7	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	H	4-OCF$_3$	147.0-149.0
8	H	H	H	O	3-SCF$_2$H	H	4-OCF$_3$	
9	H	H	H	O	3-SCF$_3$	H	4-OCF$_3$	
10	H	H	H	O	3-CN	H	4-OCF$_3$	187.0-188.9
11	H	H	H	O	3-NO$_2$	H	4-OCF$_3$	185.8-186.9
12	H	H	H	O	3-CO$_2$Et	H	4-OCF$_3$	
13	H	H	H	O	3-CH$_3$	H	4-OCF$_3$	176.0-177.3
14	H	H	H	O	H	4-F	4-OCF$_3$	177.0-178.0
15	H	H	H	O	H	4-Cl	4-OCF$_3$	173.0-175.0
16	H	H	H	O	H	4-Br	4-OCF$_3$	153.0-155.0
17	H	H	H	O	H	4-I	4-OCF$_3$	172.0-175.0
18	H	H	H	O	H	4-Me	4-OCF$_3$	
19	H	H	H	O	H	4-t-Bu	4-OCF$_3$	200.0-203.0
20	H	H	H	O	H	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	195.0-197.0
21	H	H	H	O	H	4-CH$_2$CF$_3$	4-OCF$_3$	
22	H	H	H	O	H	4-OCF$_2$H	4-OCF$_3$	173.0-174.0
23	H	H	H	O	H	4-OCF$_3$	4-OCF$_3$	189.0-190.0

【0091】
【表2】

No.	R^1	R^2	R^3	W	X$_1$	Y$_m$	Z$_n$	融点（℃）
24	H	H	H	O	H	4-OCF$_2$CF$_2$H	4-OCF$_3$	179.5-181.7
25	H	H	H	O	H	4-OMe	4-OCF$_3$	182.0-183.0
26	H	H	H	O	H	4-SMe	4-OCF$_3$	
27	H	H	H	O	H	4-SCF$_3$	4-OCF$_3$	
28	H	H	H	O	H	4-OSO$_2$CH$_3$	4-OCF$_3$	234.5-238.5
29	H	H	H	O	H	4-CO$_2$Et	4-OCF$_3$	202.0-204.0
30	H	H	H	O	H	4-CONH$_2$	4-OCF$_3$	
31	H	H	H	O	H	4-CONHMe	4-OCF$_3$	
32	H	H	H	O	H	4-CN	4-OCF$_3$	175.5-177.5
33	H	H	H	O	H	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	178.0-180.5
34	H	H	H	O	H	4-CHO	4-OCF$_3$	
35	H	H	H	O	H	4-COMe	4-OCF$_3$	
36	H	H	H	O	H	3-Cl	4-OCF$_3$	

37	H	H	H	O	H	3-CF$_3$	4-OCF$_3$	
38	H	H	H	O	H	3-CN	4-OCF$_3$	250.0-251.0
39	H	H	H	O	H	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	
40	H	H	H	O	3-F	4-F	4-OCF$_3$	
41	H	H	H	O	3-F	4-Cl	4-OCF$_3$	205.0-206.8
42	H	H	H	O	3-F	4-Me	4-OCF$_3$	
43	H	H	H	O	3-F	4-t-Bu	4-OCF$_3$	182.0-185.0
44	H	H	H	O	3-F	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	181.7-183.9
45	H	H	H	O	3-F	4-OMe	4-OCF$_3$	
46	H	H	H	O	3-F	4-OCF$_2$H	4-OCF$_3$	171.0-172.0

【0092】

【表3】

No.	R^1	R^2	R^3	W	X$_1$	Y$_m$	Z$_n$	融点（℃）
47	H	H	H	O	3-F	4-OCF$_3$	4-OCF$_3$	175.0-176.0
48	H	H	H	O	3-F	4-OCF$_2$CF$_2$H	4-OCF$_3$	167.9-170.0
49	H	H	H	O	3-F	4-SMe	4-OCF$_3$	
50	H	H	H	O	3-F	4-SCF$_3$	4-OCF$_3$	180.0-181.0
51	H	H	H	O	3-F	4-SOCF$_3$	4-OCF$_3$	
52	H	H	H	O	3-F	4-SO$_2$CF$_3$	4-OCF$_3$	
53	H	H	H	O	3-F	4-CO$_2$Et	4-OCF$_3$	186.5-188.0
54	H	H	H	O	3-F	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	200.2-202.4
55	H	H	H	O	4-F	4-CN	4-OCF$_3$	250.0-251.0
56	H	H	H	O	4-F	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	181.0-185.0
57	H	H	H	O	3-F	3-F-4-CN	4-OCF$_3$	
58	H	H	H	O	3-F	3-Cl-4-CN	4-OCF$_3$	193.7-195.9
59	H	H	H	O	3-F	3-Cl-4-CF$_3$	4-OCF$_3$	
60	H	H	H	O	3-F	3-F-4-NO$_2$	4-OCF$_3$	
61	H	H	H	O	3-F	3-Cl-4-OCF$_3$	4-OCF$_3$	
62	H	H	H	O	3-Cl	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	175.0-178.0
63	H	H	H	O	3-Cl	4-OCF$_2$H	4-OCF$_3$	161.0-163.0
64	H	H	H	O	3-Cl	4-OCF$_3$	4-OCF$_3$	165.0-167.0
65	H	H	H	O	3-Cl	4-OCF$_2$CF$_2$H	4-OCF$_3$	175.9-177.1
66	H	H	H	O	3-Cl	4-CO$_2$CH$_2$CH$_3$	4-OCF$_3$	179.0-181.0
67	H	H	H	O	3-Cl	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	198.0-199.0
68	H	H	H	O	4-Cl	4-CN	4-OCF$_3$	193.0-197.0
69	H	H	H	O	4-Cl	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	

【0093】

【表4】

No.	R^1	R^2	R^3	W	X$_1$	Y$_m$	Z$_n$	融点（℃）
70	H	H	H	O	4-Cl	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	
71	H	H	H	O	3-Br	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	184.0-185.0
72	H	H	H	O	3-Br	4-OCF$_3$	4-OCF$_3$	
73	H	H	H	O	3-Br	4-CN	4-OCF$_3$	233.8-236.8
74	H	H	H	O	3-Br	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	
75	H	H	H	O	3-CF$_3$	4-F	4-OCF$_3$	
76	H	H	H	O	3-CF$_3$	4-Cl	4-OCF$_3$	174.0-175.0

77	H	H	H	O	3-CF$_3$	4-Br	4-OCF$_3$	
78	H	H	H	O	3-CF$_3$	4-Me	4-OCF$_3$	
79	H	H	H	O	3-CF$_3$	4-Et	4-OCF$_3$	
80	H	H	H	O	3-CF$_3$	4-OMe	4-OCF$_3$	
81	H	H	H	O	3-CF$_3$	4-OCF$_2$H	4-OCF$_3$	
82	H	H	H	O	3-CF$_3$	4-OCF$_3$	4-OCF$_3$	
83	H	H	H	O	3-CF$_3$	4-OCF$_2$CF$_2$H	4-OCF$_3$	
84	H	H	H	O	3-CF$_3$	4-SCF$_2$H	4-OCF$_3$	
85	H	H	H	O	3-CF$_3$	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	188.0-191.0
86	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-F	4-OCF$_3$	
87	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-Cl	4-OCF$_3$	
88	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-Br	4-OCF$_3$	
89	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-Me	4-OCF$_3$	
90	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-t-Bu	4-OCF$_3$	
91	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	155.9-158.0
92	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-OMe	4-OCF$_3$	

【0094】

【表5】

No.	R^1	R^2	R^3	W	X_1	Y_m	Z_n	融点（℃）
93	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-OCF$_3$	4-OCF$_3$	
94	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-SMe	4-OCF$_3$	
95	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-SOMe	4-OCF$_3$	
96	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-SO$_2$Me	4-OCF$_3$	
97	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-SCF$_3$	4-OCF$_3$	
98	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-SOCF$_3$	4-OCF$_3$	
99	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-SO$_2$CF$_3$	4-OCF$_3$	
100	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-CO$_2$Et	4-OCF$_3$	
101	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-CN	4-OCF$_3$	169.1-170.4
102	H	H	H	O	3-OCF$_2$H	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	170.6-173.2
103	H	H	H	O	3-OCF$_3$	4-Cl	4-OCF$_3$	
104	H	H	H	O	3-OCF$_3$	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	158.2-159.1
105	H	H	H	O	3-OCF$_3$	4-OCF$_3$	4-OCF$_3$	
106	H	H	H	O	3-OCF$_3$	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	
107	H	H	H	O	3-SCF$_2$H	4-Cl	4-OCF$_3$	
108	H	H	H	O	3-SCF$_2$H	4-Me	4-OCF$_3$	
109	H	H	H	O	3-SCF$_2$H	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	
110	H	H	H	O	3-SCF$_2$H	4-OMe	4-OCF$_3$	
111	H	H	H	O	3-SCF$_2$H	4-OCF$_3$	4-OCF$_3$	
112	H	H	H	O	3-SCF$_2$H	4-SMe	4-OCF$_3$	
113	H	H	H	O	3-SCF$_2$H	4-SCF$_3$	4-OCF$_3$	
114	H	H	H	O	3-SCF$_2$H	4-CO$_2$Et	4-OCF$_3$	
115	H	H	H	O	3-SCF$_2$H	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	

【0095】

【表6】

No.	R^1	R^2	R^3	W	X_1	Y_m	Z_n	融点（℃）
116	H	H	H	O	3-SCF$_2$H	4-Cl	4-OCF$_3$	

117	H	H	H	O	3-SCF$_3$	4-Cl	4-OCF$_3$	
118	H	H	H	O	3-SCF$_3$	4-Me	4-OCF$_3$	
119	H	H	H	O	3-SCF$_3$	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	
120	H	H	H	O	3-SCF$_3$	4-OMe	4-OCF$_3$	
121	H	H	H	O	3-SCF$_3$	4-OCF$_3$	4-OCF$_3$	
122	H	H	H	O	3-SCF$_3$	4-SMe	4-OCF$_3$	
123	H	H	H	O	3-SCF$_3$	4-SCF$_3$	4-OCF$_3$	
124	H	H	H	O	3-SCF$_3$	4-CO$_2$Et	4-OCF$_3$	
125	H	H	H	O	3-SCF$_3$	4-CN	4-OCF$_3$	
126	H	H	H	O	3-SCF$_3$	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	
127	H	H	H	O	3-CH$_3$	4-Cl	4-OCF$_3$	
128	H	H	H	O	3-CH$_3$	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	169.5-172.0
129	H	H	H	O	3-CH$_3$	4-CN	4-OCF$_3$	193.9-195.2
130	H	H	H	O	3-CO$_2$CH$_3$	4-Cl	4-OCF$_3$	
131	H	H	H	O	3-CO$_2$CH$_3$	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	184.2-185.5
132	H	H	H	O	3-CO$_2$CH$_3$	4-CN	4-OCF$_3$	197.0-201.0
133	H	H	H	O	3-CO$_2$CH$_3$	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	
134	H	H	H	O	3-CN	H	4-OCF$_3$	187.0-188.9
135	H	H	H	O	3-CN	4-Cl	4-OCF$_3$	
136	H	H	H	O	3-CN	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	196.6-198.3
137	H	H	H	O	3-CN	4-CN	4-OCF$_3$	245.7-248.8
138	H	H	H	O	3-CN	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	

【0096】

【表7】

No.	R^1	R^2	R^3	W	X$_1$	Y$_m$	Z$_n$	融点（℃）
139	H	H	H	O	3-NO$_2$	4-Cl	4-OCF$_3$	
140	H	H	H	O	3-NO$_2$	4-CF$_3$	4-OCF$_3$	203.0-204.0
141	H	H	H	O	3-NO$_2$	4-CN	4-OCF$_3$	213.9-216.4
142	H	H	H	O	3-NO$_2$	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	
143	H	H	H	O	2,4-F$_2$	4-CN	4-OCF$_3$	
144	H	H	H	O	3,4-F$_2$	4-CN	4-OCF$_3$	199.0-199.5
145	H	H	H	O	3,5-F$_2$	4-CN	4-OCF$_3$	198.0-199.0
146	H	H	H	O	2,3-F$_2$	4-CN	4-OCF$_3$	194.0-195.5
147	H	H	H	O	2,5-F$_2$	4-CN	4-OCF$_3$	200.0-202.0
148	H	H	H	O	3-F-5-CF$_3$	4-CN	4-OCF$_3$	213.5-214.5
149	H	H	H	O	3,5-(CF$_3$)$_2$	4-CN	4-OCF$_3$	
150	H	H	H	O	3,5-Cl$_2$	4-CN	4-OCF$_3$	227.0-230.0
151	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-Cl	200.0-202.0
152	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-Br	198.0-199.5
153	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-I	212.0-213.0
154	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-CF$_3$	200.0-201.0
155	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF$_2$H	194.0-195.0
156	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF$_2$CF$_2$H	178.0-179.0
157	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF$_2$CFHCF$_3$	192.5-195.0
158	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-SCF$_3$	200.0-201.0
159	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-OSO$_2$CH$_3$	193.0-198.0
160	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-CN	200.0-203.0
161	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-CO$_2$CH$_2$CH$_3$	204.0-205.5

【0097】

【表8】

No.	R^1	R^2	R^3	W	X_1	Y_m	Z_n	融点（℃）
162	H	H	H	O	3-F	4-CN	3-Cl	204.0-205.4
163	H	H	H	O	3-F	4-CN	3,4-Cl$_2$	211.3-212.3
164	Me	H	H	O	H	H	4-OCF$_3$	163.0-165.1
165	Me	H	H	O	H	4-CN	4-OCF$_3$	207.0-209.0
166	Me	H	H	O	3-F	4-CN	4-F	
167	Me	H	H	O	3-F	4-CN	4-Cl	265.0-267.0
168	Me	H	H	O	3-F	4-CN	4-Br	
169	Me	H	H	O	3-F	4-CN	4-I	
170	Me	H	H	O	3-F	4-CN	4-CF$_3$	221.5-222.5
171	Me	H	H	O	3-F	4-CN	4-CO$_2$Et	
172	Me	H	H	O	3-F	4-CN	4-CN	
173	Me	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF$_3$	210.0-213.0
174	Me	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF$_2$CF$_2$H	
175	Me	H	H	O	3-F	4-CN	4-SCF$_3$	
176	Me	H	H	O	3-F	4-CN	4-SOCF$_3$	
177	Me	H	H	O	3-F	4-CN	4-SO$_2$CF$_3$	
178	Me	H	H	O	3-F	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	214.5-215.5
179	Me	H	H	O	3-F	4-NO$_2$	4-CF$_3$	
180	Me	H	H	O	3-F	4-NO$_2$	4-Cl	
181	Me	H	H	O	3-CF$_3$	4-CN	4-OCF$_3$	101.0-103.0
182	Me	H	H	O	3-CF$_3$	4-CN	4-Cl	154.0-156.0
183	Me	H	H	O	3-CF$_3$	4-CN	4-CF$_3$	200.0-201.0
184	Me	H	H	O	3-CF$_3$	4-CN	4-SCF$_3$	123.0-124.0

【0098】

【表9】

No.	R^1	R^2	R^3	W	X_1	Y_m	Z_n	融点（℃）
185	Me	H	H	O	3-CF$_3$	4-CN	4-SOCF$_3$	solid*1
186	Me	H	H	O	3-CF$_3$	4-CN	4-SO$_2$CF$_3$	233.0
187	Me	H	H	O	3-NO$_2$	4-CN	4-OCF$_3$	
188	Me	H	H	O	3-NO$_2$	4-CN	4-CF$_3$	
189	Me	H	H	O	3-NO$_2$	4-CN	4-Cl	
190	Et	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF$_3$	175.0-176.0
191	Et	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF$_3$	198.0-200.0 (No.190の異性体)
192	CF$_2$H	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF$_3$	
193	CF$_2$H	H	H	O	3-F	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	
194	CF$_2$H	H	H	O	3-CF$_3$	4-CN	4-OCF$_3$	
195	CF$_3$	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF$_3$	
196	CF$_3$	H	H	O	3-F	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	
197	CF$_3$	H	H	O	3-CF$_3$	4-CN	4-OCF$_3$	
198	CH$_2$CF$_3$	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF$_3$	
199	CH$_2$CF$_3$	H	H	O	3-F	4-NO$_2$	4-OCF$_3$	
200	CH$_2$CF$_3$	H	H	O	3-CF$_3$	4-CN	4-OCF$_3$	

201	CH_2CN	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF_3	
202	CH_2CN	H	H	O	3-F	4-NO_2	4-OCF_3	
203	CH_2CN	H	H	O	3-CF_3	4-CN	4-OCF_3	
204	n-Pr	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF_3	139.6-142.3
205	n-Pr	H	H	O	3-F	4-NO_2	4-OCF_3	
206	n-Pr	H	H	O	3-CF_3	4-CN	4-OCF_3	

【0099】

【表10】

No.	R^1	R^2	R^3	W	X_1	Y_m	Z_n	融点（℃）
207	i-Pr	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF_3	
208	i-Pr	H	H	O	3-F	4-NO_2	4-OCF_3	
209	i-Pr	H	H	O	3-CF_3	4-CN	4-OCF_3	
210	$CH=CH_2$	H	H	O	3-F	4-NO_2	4-OCF_3	
211	$CH_2CH=CH_2$	H	H	O	3-CF_3	4-CN	4-OCF_3	
212	$CH_2C\equiv CH$	H	H	O	3-F	4-NO_2	4-OCF_3	
213	Bn	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF_3	139.8-142.1
214	Bn	H	H	O	3-F	4-NO_2	4-OCF_3	
215	Bn	H	H	O	3-CF_3	4-CN	4-OCF_3	
216	Me	Me	H	O	3-F	4-CN	4-OCF_3	209.0-210.0
217	H	H	H	S	3-F	4-CN	4-OCF_3	172.0-174.0
218	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-i-Pr	208.0-209.0
219	H	H	H	O	3-F	4-CN	*2	165.0-167.0
220	H	H	H	O	3-F	*2	4-OCF_3	205.0-207.0
221	H	H	H	O	3-F	4-CN	3-F-4-CF_3	209.8-212.1
222	H	H	H	O	3-F	2-Cl-4-CN	4-OCF_3	184.0-187.0
223	H	H	H	O	2,3,5,6-F_4-4-CN	3-F	4-OCF_3	223.2-224.0
224	H	H	H	O	3-F	3-F-4-OCF_3	4-OCF_3	168.0-169.3
225	H	H	H	O	3-CF_3CH_2O	4-CN	4-OCF_3	187.0-189.5
226	H	H	H	O	3-O-(4-Cl-Ph)	4-CN	4-OCF_3	171.8-173.0
227	H	H	H	O	3-CF_3CH_2O	4-F	4-OCF_3	159.0-161.0
228	H	H	H	O	3-F	2-CF_3	4-OCF_3	188.0-189.5
229	H	H	H	O	3-CH=CHCH=CH-4	4-CN	4-OCF_3	257.0-264.0

【0100】

【表11】

No.	R^1	R^2	R^3	W	X_1	Y_m	Z_n	融点（℃）
230	H	H	H	O	3-CF_3	4-CN	4-CF_3	203.0-204.0
231	H	H	H	O	H	4-CN	4-CF_3	209.5-211.0
232	H	H	H	O	3-Br	4-CN	4-CF_3	188.5-189.0
233	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-$SOCF_3$	199.0-203.0
234	H	H	H	O	3-F	4-CN	3-Me-4-OCF_2HCF_2	156.0-158.0
235	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-O-(4-F-Ph)	171.0-173.0
236	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-OPr^i	197.0-199.0
237	H	H	H	O	3-CF_3-CH_2O	4-CN	4-OPr^i	187.0-189.0
238	H	H	H	O	3-CF_3-CH_2O	4-F	4-OPr^i	161.0-163.0
239	H	H	H	O	3-F	4-CN	2,4-Cl_2	208.0-209.0
240	H	H	H	O	3-F	4-CN	4-$COCH_3$	183.5-184.5

241	Me	H	H	O	H	4-NO_2	4-OCF_3	Solid*3
242	Me	H	H	O	3-CF_3	4-NO_2	4-OCF_3	189.0-192.8
243	$EtOCH_2$	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF_3	H,S
244	$MeOCH_3CH_2$	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF_3	187.0-187.9
245	$MeOCH_3CH_2$	H	H	O	3-F	4-CN	4-OCF_3	193.2-195.8 (No.246の異性体)

---

*1:^{1}H-NMR($CDCl_3$-DMSO, Me_4Si, 60MHz) δ 8.67(s, 1H, NH), 8.40(s, 1H, NH), 7.90-7.23(m, 10H, Ar), 6.70(d, J=8.7Hz, 2H, Ar), 3.24(s, 3H, Me)

*2:３，５－ジクロロ－４－（３－クロロ－５－トリフルオロメチル－２ピリジルオキシ）

*3:^{1}H-NMR($CDCl_3$-DMSO, Me_4Si, 60MHz) δ 9.72(s, 1H, NH), 8.62(s, 1H, NH), 8.23-7.12(m, 13H, Ar), 3.29(s, 3H, Me)

【０１０１】〔製剤例〕次に、本発明化合物を有効成分とする有害生物防除剤の製剤例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。尚、以下の製剤例において、「部」は重量部を意味する。

【０１０２】〔製剤例１〕水和剤

本発明化合物	・・・・・・・・・・５０部
ジークライトＰＦＰ （カオリン系クレー：ジークライト工業（株）商品名）	・・・・・・・・・・４３部
ソルポール 5050 （アニオン性界面活性剤：東邦化学工業（株）商品名）	・・・・・・・・・・　２部
ルノックス 1000 Ｃ （アニオン性界面活性剤：東邦化学工業（株）商品名）	・・・・・・・・・・　３部
カープレックス＃８０（固結防止剤） （ホワイトカーボン：塩野義製薬（株）商品名）	・・・　２部

以上を均一に混合粉砕して水和剤とする。

【０１０３】〔製剤例２〕乳　剤

本発明化合物	・・・・・・・・・・　３部
キシレン	・・・・・・・・・・７６部
イソホロン	・・・・・・・・・・１５部
ソルポール3005X （非イオン性界面活性剤とアニオン性界面活性剤との混合物：東邦化学工業（株）商品名）	・・・・・・・・・・　６部

以上を均一に混合して乳剤とする。

【０１０４】〔製剤例３〕フロアブル剤

本発明化合物	・・・・・・・・・・３５部
アグリゾールＳ－711 （非イオン性界面活性剤：花王（株）商品名）	・・・・・・・・・・　８部
ルノックス 1000 Ｃ （アニオン性界面活性剤：東邦化学工業（株）商品名）	・・・・・・・・・・0.5部
１％ロドポール水 （増粘剤：ローン・プーラン社商品名）	・・・・・・・・・２０部
エチレングリコール（凍結防止剤）	・・・・　８部
水	・・・・・・・・・・28.5部

以上を均一に混合して、フロアブル剤とする。

【０１０５】〔製剤例４〕粒状水和剤（ドライフロアブル剤）

本発明化合物	・・・・・・・・・・７５部
イソバンNo.1 （アニオン性界面活性剤：クラレイソプレンケミカル（株）商品名）	・・・・・・・・・・１０部
バニレックスＮ （アニオン性界面活性剤：山陽国策パルプ（株）商品名）	・・・・・・・・・・　５部
カープレックス＃８０ （ホワイトカーボン：塩野義製薬（株）商品名）	・・・・・・・・・・１０部

以上を均一に混合微粉砕してドライフロアブル剤とする。

【０１０６】〔製剤例５〕粒　剤

本発明化合物	・・・・・・・・０．１部
ベントナイト	・・・・・・・５５．０部
タルク	・・・・・・・４４．９部

以上を均一に混合粉砕した後、少量の水を加えて攪拌混合捏和し、押出式造粒機で造粒し、乾燥して粒剤にする。

【０１０７】〔製剤例６〕粉　剤

本発明化合物	・・・・・・・・３．０部
カープレックス＃８０ （ホワイトカーボン：塩野義製薬（株）商品名）	・・・・・・・・０．５部
クレー	・・・・・・・・　９５部
リン酸ジイソプロピル	・・・・・・・・１．５部

以上を均一に混合粉砕して粉剤とする。

【０１０８】使用に際しては上記水和剤、乳剤、フロアブル剤、粒状水和剤は水で５０～２００００倍に希釈して有効成分が１ヘクタール（ha）当たり０．００５～５０ｋｇになるように散布する。

【０１０９】〔試験例〕次に、本発明化合物の有害生物防除剤としての有用性について、以下の試験例において具体的に説明する。

【０１１０】試験例１　ハスモンヨトウに対する殺虫試験

明細書に記載された本発明化合物の５％乳剤（化合物によっては25％水和剤を供試）を展着剤の入った水で希釈して、1000ppm濃度の薬液に調製し、この薬液中にカンランの葉を約10秒間浸漬し、風乾後シャーレに入れ、こ

の中にハスモンヨトウ２令幼虫をシャーレ当たり10頭を放虫し、孔のあいた蓋をして25℃恒温室に収容し、６日間経過後の死虫率を下記の計算式から求めた。尚、試験は２区制で行なった。

【０１１１】

死虫率（％）＝（死虫数／放虫数）×１００

【０１１２】その結果、以下の化合物が１００％の死虫率を示した。

本発明化合物：Ｎｏ．１，２，３，４，５，７，１１，１３，１４，１５，１６，１７，２０，２２，２３，２４，２９，３２，３３，３８，４１，４３，４４，４６，４７，４８，５０，５３，５４，５５，５６，５８，６２，６３，６４，６５，６６，６７，６８，７１，７３，７６，８５，９１，１０１，１０２，１０４，１２８，１２９，１３６，１４０，１４４，１４５，１５１，１５２，１５３，１５４，１５５，１５６，１５７，１５８，１６０，１６１，１６３，１６４，１６５，１６７，１７０，１７３，１８１，１８２，１８４，１９０，１９１，２０４，２１３，２１７，２２１．

【０１１３】試験例２　ニジュウヤホシテントウに対する殺虫試験

明細書に記載された本発明化合物の５％乳剤（化合物によっては25％水和剤を供試）を展着剤の入った水で希釈して、1000ppm濃度の薬液に調製し、この薬液中にトマトの葉を約10秒間浸漬し、風乾後シャーレに入れ、この中にニジュウヤホシテントウ２令幼虫をシャーレ当たり10頭を放虫し、蓋をして25℃恒温室に収容し、６日間経過後の死虫率を下記の計算式から求めた。尚、試験は２区制で行なった。

【０１１４】

死虫率（％）＝（死虫数／放虫数）×１００

【０１１５】その結果、以下の化合物が１００％の死虫率を示した。

本発明化合物：Ｎｏ．１，２，３，４，５，７，１０，１１，１３，１４，１５，１６，１７，２０，２２，２３，２４，２９，３２，３３，３８，４１，４４，４６，４７，４８，５０，５３，５４，５５，５６，５８，６２，６３，６４，６５，６６，６７，６８，７１，７３，７６，８５，９１，１０１，１０２，１０４，１２８，１２９，１３６，１３７，１４０，１４１，１４４，１４５，１４６，１５１，１５２，１５３，１５４，１５５，１５６，１５７，１５８，１６０，１６１，１６３，１６４，１６５，１６７，１７０，１７３，１８１，１８２，１８４，１９０，１９１，２０４，２１３，２１６，２１７，２２１．

【０１１６】

【発明の効果】本発明化合物は多くの農業害虫、ハダニ類に対して優れた殺虫・殺ダニ活性を有し、かつホ乳類、魚類及び益虫に対してはほとんど悪影響を及ぼさない。従って、本発明化合物は、有用な有害生物防除剤を提供することができる。

フロントページの続き

(72)発明者　石井　茂
千葉県船橋市坪井町722番地１　日産化学工業株式会社中央研究所内
(72)発明者　小倉　友幸
千葉県船橋市坪井町722番地１　日産化学工業株式会社中央研究所内
(72)発明者　三宅　敏郎
埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470　日産化学工業株式会社生物科学研究所内
(72)発明者　藤田　明彦
埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470　日産化学工業株式会社生物科学研究所内
(72)発明者　三森　紀彦
埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470　日産化学工業株式会社生物科学研究所内
(72)発明者　瀧井　新自
埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470　日産化学工業株式会社生物科学研究所内